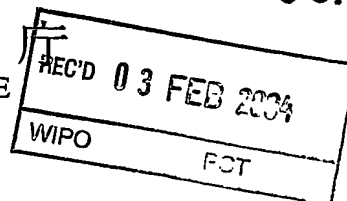


09. 1. 2004

日本国特許
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2003年 1月10日

出願番号
Application Number: 特願2003-003856
[ST. 10/C]: [JP2003-003856]

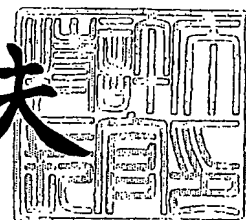
出願人
Applicant(s): 日本電気株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 8月 8日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願
【整理番号】 33703934
【提出日】 平成15年 1月10日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 C08L101/16
C08K 7/02

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】 芹澤 慎

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】 井上 和彦

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】 位地 正年

【特許出願人】

【識別番号】 000004237
【氏名又は名称】 日本電気株式会社

【代理人】

【識別番号】 100117226
【弁理士】
【氏名又は名称】 吉村 俊一
【電話番号】 03-3947-4103

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 176752
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0211103

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ケナフ繊維強化樹脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ケナフ繊維を含有した生分解性樹脂組成物であって、ケナフ繊維の含有量が 10～50 質量%であることを特徴とするケナフ繊維強化樹脂組成物。

【請求項 2】 前記ケナフ繊維の含有量が 15～40 質量%であることを特徴とする請求項 1 に記載のケナフ繊維強化樹脂組成物。

【請求項 3】 前記生分解性樹脂が結晶性を有する熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載のケナフ繊維強化樹脂組成物。

【請求項 4】 前記生分解性樹脂がポリ乳酸であることを特徴とする請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載のケナフ繊維強化樹脂組成物。

【請求項 5】 前記ケナフ繊維の平均繊維長（破碎片を除く繊維の数平均繊維長）が 100 μ m～20 mmであることを特徴とする請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載のケナフ繊維強化樹脂組成物。

【請求項 6】 前記ケナフ繊維が 300 μ m～20 mmの繊維長のケナフ繊維を含むことを特徴とする請求項 5 に記載のケナフ繊維強化樹脂組成物。

【請求項 7】 前記ケナフ繊維が、ケナフの韌皮部から調製した繊維であることを特徴とする請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載のケナフ繊維強化樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電気・電子機器等の製品に用いられる繊維強化樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、耐熱性、剛性等の物性バランスとコストに優れ、かつ環境適合性に優れた電気・電子機器の用途に適する、ケナフ繊維を生分解性樹脂中に含有した成形用樹脂組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、電気・電子機器等製品の薄型・小型化に伴い、それらの製品を成形するための繊維強化樹脂組成物の需要が高まっている。一般的な繊維強化樹脂組成物には、ガラス繊維または炭素繊維が強化繊維として使用されている。これらの繊維は、耐熱性や強度の改良には効果的であるが、近年、環境を考慮した強化材として、植物素材が注目され始めている。

【0003】

植物素材としては、パルプや植物繊維、ケナフ等の植物の粉碎物を、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂に混合する技術が開示されている。例えば、熱可塑性樹脂系については、特許文献1～6 および非特許文献1に示されているように、植物由来の繊維や植物の粉碎物と熱可塑性樹脂との組成物が開示されている。

【0004】

特許文献1には、原形をとどめたまま破断又は切断したケナフ茎片80～50質量%（重量%）と合成樹脂20～50質量%（重量%）とからなるケナフ茎片含有樹脂組成物により、端材を発生させず、軽量かつ高剛性のアスペクト比の高いモールド成形体を提供できることが記載されている。

【0005】

なお、ケナフは、ハイビスカス等と同じ仲間アオイ科の一年生植物で、成長が速く、半年で高さ4～5m、幹の直径4～5cmにもなり、一番成長の速いときには1日で10cmぐらい伸びる。このようにケナフは、光合成速度が速いので二酸化炭素を多量に吸収できることから、二酸化炭素による地球温暖化、森林破壊という地球問題を同時に解決する手段の一つとして注目されている。ケナフの茎は、茎の皮の繊維の韌皮部と茎の中心にある木質部とから構成されており、それぞれ異なる性質を有している。韌皮部はケナフの茎の3割（質量比）を占め、その特徴は、針葉樹の繊維に似て、長くて強度に優れている。ロープ、布、袋、紙等にはこの韌皮部の繊維が使われる。木質部はケナフの茎の7割（質量比）を占め、住居の補強材やカヌーの材料等となり、その特徴は広葉樹の繊維より短い。韌皮部と木質部を合わせた全茎部は広葉樹の繊維と似ており、高質の和紙風の紙にもなる。また、ケナフは、別名洋麻とも呼ばれている。

【0006】

非特許文献1には、ケナフ靱皮から不織布を作製し、これを湿式法にてポリ乳酸と組み合わせた複合材料が、高力学特性および耐熱性を併せ持つことができると記載されている。

【0007】

特許文献2には、パルプ30～55重量部を熱可塑性樹脂に含有させることにより、機械的強度および耐熱性が向上した転写具用の熱可塑性樹脂が開示されている。熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリスチレン、ABS樹脂が検討されている。

【0008】

特許文献3には、平均繊維長が0.3～3.0mmであるケナフ等の天然繊維からなるパルプを50質量%（重量%）以上含有する熱可塑性樹脂組成物を用いた感光材料用容器が記載されている。そして、その感光材料用容器が寸法安定性や廃棄特性に優れ、臭いもなく、写真性能への影響もないことが記載されている。熱可塑性樹脂としては、石油樹脂、より具体的にはポリオレフィン樹脂が検討されている。ポリオレフィン樹脂に植物繊維のみを配合した組成物は、植物繊維の分散が均一になり難いこと、植物繊維の配合率を減らすことで均一性は改善されるが剛性、寸法安定性、耐熱性、塗装性等の物理特性が低下してしまうこと、そうした物理特性を達成するために植物繊維の配合率を高めかつ分散性を改善するためにロジン又はその類似物と可塑剤の組合せが極めて重要であること、等が示されている。

【0009】

特許文献4には、繊維長が200μm以下に粉碎された植物繊維粉末1～30重量部、ポリ乳酸など脂肪族ポリエステル樹脂99～70重量部、さらにアルカリ土類金属酸化物を含有する生分解性樹脂組成物が記載されている。この樹脂組成物においては、安価な植物繊維を配合することで組成物としてのコストを低減できることと、植物繊維の組成物としての生分解速度が向上することが示されている。植物繊維の配合量が1質量%以下では発明の効果が得られないこと、30質量%以上では組成物の流動性が低下し成形加工性が不良となることも示されている。

【0010】

特許文献5には、60～100メッシュ（150 μ m～250 μ m）に粉碎された藁等の植物繊維40～60質量%（重量%）とポリ乳酸60～40質量%（重量%）とを含有する樹脂組成物を用いることにより、従来廃棄処分としていた植物繊維を有効に利用する方法が開示されている。

【0011】

特許文献6には、繊維長が3～10mmからなる硬質の麻繊維からなるセルロース繊維1～100質量部とポリ乳酸などの生分解性樹脂100質量部とを含有し、生分解性を損なうことなく機械的強度を向上させた複合材料が記載されている。

【0012】

【特許文献1】

特許第3316211号公報（段落番号0004）

【特許文献2】

特開平6-239516号公報（段落番号0007）

【特許文献3】

特開2000-219812号公報（段落番号0013～0020）

【特許文献4】

特開平10-273582号公報（段落番号0005、0006、0011）

【特許文献5】

特開平2002-69303号公報（段落番号0013、0014）

【特許文献6】

特開平2001-335710号公報（段落番号0003、0004）

【非特許文献1】

西野孝、“新手法によるセルロースの複合化技術”、コンバーテック8月号、P36～39、2002年

【0013】

【発明が解決しようとする課題】

電気・電子機器の外装材においては、強度等の単なる筐体としての物理的な特性以外に、成形性等の製造上の要求ならびに美観（色合い・質感等）や手触りなどのデザイン上の要求も満たすことが必要とされる。製造上の要求としては、電気・電子機器製品等の外装材製造の汎用技術である射出成形法に適用できること、すなわち成形温度で原料（繊維強化樹脂では樹脂分と繊維分の混合物）が流動可能であると共に、繊維分が樹脂中に均一に分散すること、成形機内で組成物が詰まる等の問題を起こさないこと、等が挙げられる。

【0014】

しかしながら、従来のパルプや植物繊維、植物の粉碎物などで強化した樹脂組成物は、電気・電子機器等の成形体への適用が難しかった。例えば、特許文献1に記載された組成物では、使用されているケナフ茎片の繊維長が20～100mmと長く、ケナフの配合率が50～80質量%と高いので、強度の面では優れているが、電気・電子機器、特に細かな凹凸の成形や5mm以下の厚みでの成形が要求される電子機器の外装材には適用が難しいという問題がある。昨今の携帯電子機器では2mm以下の厚みが要求されており、使用可能な長さの繊維は一層限定されている。また、非特許文献1に記載されているケナフ不織布にポリ乳酸を含浸させて複合材料を作製する方法は、成形性の面で電気・電子機器製品の装材への適用は難しいという問題があった。

【0015】

また、特許文献2に記載された組成物を電気・電子機器製品の装材に適用することを発明者らが検討したところ、射出成形することについては問題なかったが、1.80MPaレベルの高荷重時での耐熱性が不足しており、パルプの補強効果は十分でないことが分かった。

【0016】

本発明は、上記問題を解決するためになされたものであって、電気・電子機器製品用の装材に使用可能な、生分解性の植物繊維強化樹脂組成物の提供を目的とする。より詳細には、電気・電子機器製品等の装材の製造などに通常利用される射出成形法により成形可能な樹脂組成物を提供することを目的とする。

【0017】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するに当たり、本願発明者は、種々の植物繊維の可能性を検討し、繊維の強度、生分解性樹脂との親和性、地球環境問題の対策技術としての優位性等から判断し、ケナフから得られる繊維を選択した。その上で、樹脂中の含有量、繊維特性に関して詳細に検討し、以下の発明を成すに至った。

【0018】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物は、ケナフ繊維を含有した生分解性樹脂組成物であって、ケナフ繊維の含有量が10～50質量%であることを特徴とする。ケナフ繊維の含有量は15～40質量%であることがより好ましい。

【0019】

この発明によれば、ケナフ繊維の含有量を上記の範囲内としたので、電気・電子機器製品等の成形体の製造などに必要とされる精密な射出成形が可能となり、機械的強度が向上すると共に耐熱性も向上するという効果が得られる。なお、射出成形法により成形可能とは、成形温度で原料（繊維強化樹脂では樹脂分と繊維分の混合物）が流動可能である共に、繊維分が樹脂中に均一に分散すること、成形機内で樹脂組成物が詰まる等の問題を起こさないことである。

【0020】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物において、生分解性樹脂が結晶性を有する熱可塑性樹脂であることが好ましく、特にポリ乳酸であることが好ましい。

【0021】

また、本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物において、ケナフ繊維の平均繊維長（破砕片を除く繊維の数平均繊維長）が100 μ m～20mmであることが好ましく、また、ケナフ繊維が300 μ m～20mmの繊維長のケナフ繊維を含むことが好ましい。

【0022】

前記ケナフ繊維としては、ケナフの靱皮部から調製した繊維であることが好ましい。

【0023】**【発明の実施の形態】**

先ず、本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物を構成するケナフ繊維について詳細に説明する。

【0024】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物を構成するケナフ繊維は、ケナフを破断、切断、または粉碎することによって得られる。本発明において、ケナフ繊維とは、ケナフの木質部、靱皮部、および靱皮部と木質部を合わせた全茎部から調製した繊維、ならびにこれらのブレンド繊維の総称である。以下の記述においては、木質部から調製した繊維を木質繊維と称し、靱皮部から調製した繊維を靱皮繊維と称し、全茎部から調製した繊維を全茎繊維と称す。本発明においてはいずれのケナフ繊維も利用可能であるが、靱皮繊維または全茎繊維、あるいは木質繊維と靱皮繊維または全茎繊維とをブレンドしたものをを用いることが好ましい。特に好ましくは、靱皮繊維のみを使用することである。靱皮繊維は補強効果が大きく、靱皮繊維のみを使用することで、成形体を形成する生分解性樹脂の補強効果をより一層向上できる。

【0025】

本発明に適用されるケナフ繊維は、平均繊維長が $100\mu\text{m}$ ～ 20mm であり、かつ少なくとも $300\mu\text{m}$ ～ 20mm の繊維長のケナフ繊維を含んでいることが好ましい。本発明の樹脂組成物はこうした範囲からなるケナフ繊維が含有されているので、成形体を形成する生分解性樹脂の補強効果がより高められる。より好ましいケナフ繊維の平均繊維長は $1\sim 10\text{mm}$ であり、生分解性樹脂の補強効果をより一層向上させることができる。ここで、平均繊維長とは、破砕片を除く繊維の数平均繊維長を意味し、破砕片とは、長手方向の長さが $50\mu\text{m}$ に満たないものと定義する。

【0026】

含有するケナフ繊維が 20mm を超える平均繊維長である場合または 20mm を超える繊維長のケナフ繊維を含む場合には、ケナフ繊維強化樹脂組成物を製造する際に、混練機などの製造装置内で樹脂中の繊維分の分散が不均一になり易い。成形品の肉厚に対して長過ぎる繊維が含まれると、成形品の外観や手触りなどが損なわれるので、最大繊維長は成形品の肉厚に対して10倍以下が望ましく、

より望ましくは5倍以下である。さらに射出成形時においては、成形装置内で樹脂組成物が詰まる原因となる。特に、繊維長が50mmを超えるケナフ繊維については、混練機に導入する前に除去することが望ましい。一方、繊維長が300 μ m未満のケナフ繊維のみを含有したケナフ繊維強化樹脂組成物を用いた場合は、ケナフ繊維による補強効果が十分ではない。

【0027】

平均繊維長が100 μ m～20mmであり、かつ少なくとも300 μ m～20mmの繊維長のケナフ繊維を含むケナフ繊維を、ポリ乳酸等の脂肪族ポリエステル樹脂のような結晶性の熱可塑性樹脂に含有させた場合、強度が向上するだけでなく、熱変形温度を指標とする耐熱性も向上することが発明者による検討で明らかとなった。そのメカニズムは明らかではないが、次のように推定している。原料樹脂中には結晶質部分と非晶質部分が混在し、非晶質部分の方が低い温度で流動化するので、その非晶質部分に入り込んだケナフ繊維が非晶質部分の流動を阻害し、その結果、耐熱性が向上するものと推定される。この耐熱性向上の効果も、上述の補強効果と同様に、平均繊維長1～10mmのケナフ繊維を用いた場合により高まる。

【0028】

ケナフ繊維の含水率は、ケナフ繊維の質量に対して4質量%以下であることが好ましい。ケナフ繊維の含水率が4質量%を超えると、樹脂組成物を成形する時に、「巣」や「膨れ」等による外観形状の悪化を招くことがある。特に好ましいケナフ繊維の含水率は、ケナフ繊維の質量に対して1質量%以下である。ケナフ繊維の含水率が1質量%以下の場合、得られた成形体の外観形状が良好だけでなく、成形体の補強効果をその各部において安定して発現させることができる。

【0029】

また、水分以外の揮発分もあらかじめ除去しておくことが好ましく、補強効果を安定して発現させることができる。ケナフ繊維中の水分以外の揮発分については、130℃で発生する量がケナフ繊維の質量に対して1質量%以下であることが特に好ましく、補強効果をより安定して発現させることができる。ケナフ繊維と樹脂との熔融混合前やケナフ繊維強化樹脂組成物を成形機に導入する前に水分

や揮発成分を除去する場合には、ケナフ繊維を30～300℃で乾燥させることが好ましく、80～150℃で乾燥させることがより好ましい。

【0030】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物においては、ケナフ繊維の含有量が10～50質量%であることが好ましい。ケナフ繊維の含有量が50質量%を超える場合には、樹脂組成物の流動性が著しく低下するので、電気・電子機器製品の製造方法として多く用いられる射出成形において、満足する製品形状や製品形態が得られない等の問題が発生する。特に細かな凹凸の成形や5mm以下の厚みでの成形が要求される電子機器の外装材には適用できない。一方、ケナフ繊維の含有量が10質量%未満では、得られた成形体の曲げ弾性率が急激に低下するので、補強効果が顕著に低下してしまう。なお、ケナフ繊維の含有量の好ましい範囲は15～40質量%である。

【0031】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物において、生分解性樹脂が結晶性を有する熱可塑性樹脂である場合、機械的強度の向上に加え、熱変形温度を指標とする耐熱性も改善されるが、ケナフ繊維の含有量が10質量%と15質量%の間を境に耐熱性は大きく改善され、20質量%を超えてもほとんど変わらない。この現象を発明者の推定する上述の耐熱性向上メカニズムで考えると、非晶質部分の流動性抑制の効果が、10質量%以上で有効に働き、20質量%を超えると頭打ちになると説明できる。

【0032】

また、必要に応じて、表面処理を施したケナフ繊維も使用することができる。表面処理の目的は、生分解性樹脂との親和性向上と、ケナフ繊維の難燃性向上である。

【0033】

ケナフ繊維と生分解性樹脂との親和性向上（密着性向上と同義。）のための表面処理方法としては、シラン系、チタネート系などのカップリング剤による処理や、オゾンやプラズマ処理、さらに、アルキルリン酸エステル型界面活性剤による処理が有効である。しかしながら、これらに特に限定されるものではなく、植

物繊維の表面改質に通常使用できる処理方法を使用可能である。ケナフ繊維にこうした表面処理を施すことにより、ケナフ繊維と生分解性樹脂との親和性を向上させることができるので、成形体を形成する生分解性樹脂の補強効果をより一層向上させることができる。

【0034】

また、ケナフ繊維の難燃性向上のための表面処理としては、通常の木材や紙類の難燃化処方を用いることができる。例えば、リン酸バリウム、リン酸アンモニウム、ポリリン酸アンモニウム等のリン酸塩の水溶液にケナフ繊維を浸漬して、繊維表面に難燃性のリン酸塩層を形成させる方法がある。さらに、珪素や硼素の金属アルコキシドの水溶液や、これらの金属単体または金属酸化物等の金属化合物を酸や塩基を用いて溶解させた水溶液、さらに、珪酸や硼酸あるいはこれらの金属塩の水溶液にケナフ繊維を浸漬することで繊維表面に難燃性の金属酸化物または他の金属化合物を形成させる方法などが挙げられる。ケナフ繊維にこうした表面処理を施すことにより、ケナフ繊維の難燃性を向上させることができるので、成形時の成形加工温度が上がった場合でもケナフ繊維に基づく生分解性樹脂の補強効果を良好に保持することができる。

【0035】

次に、本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物を構成する生分解性樹脂について説明する。

【0036】

生分解性樹脂の原料となる生分解性樹脂材料としては、主に人工的に合成され入手できる生分解性のモノマー、主に人工的に合成され入手できる生分解性のモノマーの誘導体からなるオリゴマー及びポリマー、主に天然で合成され入手できる生分解性のモノマーからなるオリゴマーの変性体およびポリマーの変性体、主に天然で合成され入手できる生分解性のモノマーの誘導体からなるオリゴマー及びポリマー、オリゴマーの変性体およびポリマーの変性体などが使用される。

【0037】

人工合成生分解性オリゴマー及びポリマーとしては、例えば、ポリ乳酸（島津製作所製、商品名：ラクティ等）、ポリグリコール酸などのポリアルファヒドロ

キシ酸、ポリイブシロンカプロラクトン等のポリオメガヒドロキシアルカノエート（ダイセル社製、商品名：プラクセル等）、ブチレンサクシネート及び／又はエチレンサクシネートの重合体であるポリアルキレンアルカノエート（昭和高分子社製、商品名：ビオノーレなど）、ポリブチレンサクシネート等のポリエステル類、ポリγ-グルタメート（味の素社製、商品名：ポリグルタミン酸など）等のポリアミノ酸類、ポリビニルアルコール、ポリエチレングリコール等のポリオール類などを挙げることができる。なお、これらの人工合成生分解性オリゴマー及びポリマーの変性体も好適に使用できる。

【0038】

また、天然合成生分解性オリゴマー及びポリマーとしては、澱粉、アミロース、セルロース、セルロースエステル、キチン、キトサン、ゲランガム、カルボキシシル基含有セルロース、カルボキシシル基含有デンプン、ペクチン酸、アルギン酸などの多糖類；微生物により合成されるヒドロキシブチレート及び／又はヒドロキシバリレートの重合体であるポリベータヒドロキシアルカノエート（ゼネカ社製、商品名：バイオポール等）などを挙げることができ、中でも、澱粉、アミロース、セルロース、セルロースエステル、キチン、キトサン、微生物により合成されるヒドロキシブチレート及び／又はヒドロキシバリレートの重合体であるポリベータヒドロキシアルカノエート等が好ましい。なお、天然合成生分解性オリゴマー及びポリマーの変性体も好適に使用できる。

【0039】

更に、天然合成生分解性オリゴマー及びポリマーの変性体としては、リグニン等を使用できる。リグニンは、木材中に20～30%含有されるコニフェリルアルコール及びシナピルアルコールの脱水素重合体で、生分解される。

【0040】

以上のような生分解性樹脂材料の中でも、人工合成生分解性オリゴマー及びポリマー、人工合成生分解性オリゴマー及びポリマーの変性体、天然合成生分解性オリゴマー及びポリマーの変性体が、分子間の結合力が適度であるため熱可塑性に優れ、熔融時の粘度が著しく上昇することは無く、良好な成形加工性を有するため好ましく用いられる。

【0041】

なかでも、熱可塑性と結晶性を有するポリエステル類およびポリエステル類の変性体が好ましく、脂肪族ポリエステル類および脂肪族ポリエステル類の変性体が更に好ましく、特に脂肪族ポリエステル類の中ではポリ乳酸が物性、価格のバランスで優れている。また、ポリアミノ酸類およびポリアミノ酸類の変性体が好ましく、脂肪族ポリアミノ酸類および脂肪族ポリアミノ酸類の変性体が更に好ましい。また、ポリオール類およびポリオール類の変性体が好ましく、脂肪族ポリオール類および脂肪族ポリオール類の変性体が更に好ましい。

【0042】

他の熱可塑性樹脂、例えばポリプロピレン、ポリスチレン、ABS、ナイロン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートまたはポリカーボネートと、前記の生分解性樹脂とのアロイを生分解性熱可塑性樹脂の代わりに、使用することができる。中でも、結晶性を有する熱可塑性樹脂、例えばポリプロピレン、ナイロン、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートと、前記の生分解性樹脂とのアロイを使用することが好ましい。

【0043】

また、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、アルキド樹脂、アクリル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、シアネート系樹脂、イソシアネート系樹脂、フラン樹脂、ケトン樹脂、キシレン樹脂、熱硬化型ポリイミド、熱硬化型ポリアミド、スチリルピリジン系樹脂、ニトリル末端型樹脂、付加硬化型キノキサリン、付加硬化型ポリキノキサリン樹脂などの熱硬化性樹脂や、さらに、リグニン、ヘミセルロース、セルロース等の植物原料を使用した熱硬化性樹脂もケナフ繊維により強化することができる。熱硬化性樹脂を使用する場合、硬化反応に必要な硬化剤や硬化促進剤を使用できる。

【0044】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物は、上述した生分解性樹脂を50～90質量%含有するが、本発明の趣旨及び効果を逸脱しない範囲内で、基本構成成分である生分解性樹脂とケナフ繊維以外に、結晶核剤および通常、熱可塑性樹脂に添

加される各種添加剤、例えば酸化防止剤、熱安定剤、紫外線吸収剤、光安定剤、帯電防止剤、中和剤、顔料等の着色剤、分散剤、ロジン、可塑剤、合成ゴム類、無機質添加剤、難燃剤等を併用することができる。さらに、必要に応じてケナフ繊維や生分解性樹脂が生物的に侵害されるのを防止するための抗菌剤や香料を添加することができ、これら抗菌剤及び／又は香料をあらかじめケナフ繊維に固着せしめてもよい。本発明の樹脂組成物が天然素材のケナフ繊維と生分解性樹脂を基本構成とするものであるので、結晶核剤やその他添加剤もまた、天然素材や生分解性を有する、環境適合性に優れたものであることが望ましい。

【0045】

本発明において、結晶性を有する樹脂を用いた場合においては、結晶核剤を添加して流動開始温度が低い非晶質分の結晶化をより促進させることが好ましく、ケナフ繊維強化樹脂組成物の成形性の向上、成形時間の短縮、および成形体の機械的強度と耐熱性の向上を達成することができる。この結晶核剤は、それ自身が結晶核となり、樹脂の構成分子を規則的な三次元構造とするように作用する。なお、樹脂組成物に結晶核剤を添加することにより非晶質分の結晶化が促進するので、成形時の金型温度が高い場合であっても成形体の変形が抑制され、その成形体を金型から取り出すのが容易になるという効果がある。特にその金型温度が樹脂のガラス転移温度 T_g よりも高い場合であっても同様の効果が得られる。

【0046】

結晶核剤としては、無機系の結晶核剤または有機系の結晶核剤を使用することができる。無機系の結晶核剤としては、タルク、炭酸カルシウム、マイカ、窒化硼素、合成珪酸、珪酸塩、シリカ、カオリン、カーボンプラック、亜鉛華、モンモリロナイト、粘土鉱物、塩基性炭酸マグネシウム、石英粉、ガラスファイバー、ガラス粉、ケイ藻土、ドロマイト粉、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化アンチモン、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、アルミナ、ケイ酸カルシウム、窒化ホウ素等を挙げる事が可能である。

【0047】

また、有機系の結晶核剤としては、①有機カルボン酸類、例示すると、オクチル酸、トリイル酸、ヘプタン酸、ペラルゴン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パ

ルチミン酸、ステアリン酸、ベヘニン酸、セロチン酸、モンタン酸、メリシン酸、安息香酸、p-tert-ブチル安息香酸、テレフタル酸、テレフタル酸モノメチルエステル、イソフタル酸、イソフタル酸モノメチルエステル、ロジン酸、12-ヒドロキシステアリン酸、コール酸等、②有機カルボン酸アルカリ（土類）金属塩、例示すると、上記有機カルボン酸のアルカリ（土類）金属塩等、③カルボキシル基の金属塩を有する高分子有機化合物、例示すると、ポリエチレンの酸化によって得られるカルボキシル基含有ポリエチレン、ポリプロピレンの酸化によって得られるカルボキシル基含有ポリプロピレン、エチレン、プロピレン、ブテン-1等のオレフィン類とアクリル酸又はメタクリル酸との共重合体、スチレンとアクリル酸又はメタクリル酸との共重合体、オレフィン類と無水マレイン酸との共重合体、スチレンと無水マレイン酸との共重合体等の金属塩等、④脂肪族カルボン酸アミド、例示すると、オレイン酸アミド、ステアリン酸アミド、エルカ酸アミド、ベヘニン酸アミド、N-オレイルパルミトアミド、N-ステアリルエルカ酸アミド、N, N'-エチレンビス（ステアロアミド）、N, N'-メチレンビス（ステアロアミド）、メチロール・ステアロアミド、エチレンビスオレイン酸アמיד、エチレンビスベヘン酸アמיד、エチレンビスステアリン酸アמיד、エチレンビスラウリン酸アמיד、ヘキサメチレンビスオレイン酸アמיד、ヘキサメチレンビスステアリン酸アמיד、ブチレンビスステアリン酸アמיד、N, N'-ジオレイルセバシン酸アミド、N, N'-ジオレイルアジピン酸アミド、N, N'-ジステアリルアジピン酸アミド、N'-ジステアリルセバシン酸アミド、m-キシリレンビスステアリン酸アミド、N, N'-ジステアリルイソフタル酸アミド、N, N'-ジステアリルテレフタル酸アミド、N-オレイルオレイン酸アミド、N-ステアリルオレイン酸アミド、N-ステアリルエルカ酸アミド、N-オレイルステアリン酸アミド、N-ステアリルステアリン酸アミド、N-ブチル-N'ステアリル尿素、N-プロピル-N'ステアリル酸尿素、N-アリル-N'ステアリル尿素、N-フェニル-N'ステアリル尿素、N-ステアリル-N'ステアリル尿素、ジメチトール油アמיד、ジメチルラウリン酸アמיד、ジメチルステアリン酸アמיד等、N, N'-シクロヘキサンビス（ステアロアミド）、N-ラウロイル-L-グルタミン酸- α 、 γ -n-ブ

チルアミド等、⑤高分子有機化合物、例示すると、3, 3-ジメチルブテン-1, 3-メチルブテン-1, 3-メチルペンテン-1, 3-メチルヘキセン-1, 3, 5, 5-トリメチルヘキセン-1などの炭素数5以上の3位分岐 α -オレフィン、ならびにビニルシクロペンタン、ビニルシクロヘキサン、ビニルノルボルナンなどのビニルシクロアルカンの重合体、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールなどのポリアルキレングリコール、ポリグリコール酸、セルロース、セルロースエステル、セルロースエーテル、ポリエステル、ポリカーボネート等、⑥リン酸又は亜リン酸及の有機化合物またはその金属塩、例示すると、リン酸ジフェニル、亜リン酸ジフェニル、リン酸ビス(4-tert-ブチルフェニル)ナトリウム、リン酸メチレン(2, 4-tert-ブチルフェニル)ナトリウム等；⑦ビス(p-メチルベンジリデン)ソルビトール、ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトール等のソルビトール誘導体、⑧コレステリルステアレート、コレステリロキシステアラミド等のコレステロール誘導体、⑨無水チオグリコール酸、パラトルエンスルホン酸、パラトルエンスルホン酸アミドおよびその金属塩等を挙げることが出来る。

【0048】

本発明に用いることができるポリ乳酸などの生分解性樹脂は、いわゆるポリエステル樹脂であるため、加水分解を受けて分子量が低下する。従って、上記の結晶核剤の中でもポリエステルの加水分解を促進しない中性物質からなる結晶核剤が特に好ましく用いられる。また、エステル交換反応によるポリエステル樹脂の低分子量化を防ぐためには、カルボキシ基を有する結晶核剤よりもその誘導体であるエステルやアミド化合物の方が結晶核剤としては好ましく、同様に、ヒドロキシ基を有する結晶核剤よりもその誘導体であるエステルやエーテル化合物の方が結晶核剤としては好ましい。

【0049】

有機結晶核剤については、射出成形等において高温熔融状態で樹脂と相溶あるいは微分散し、金型内での成形冷却段階で析出あるいは相分離し、結晶核として作用する有機結晶核剤が好ましく用いられる。また、無機結晶核剤は、微粒子の無機物が樹脂中で高分散することにより結晶核として効率よく機能する。無機物

の表面を相溶化处理（相溶化作用を有する樹脂や化合物を用いた被覆処理、または、イオン交換処理やカップリング剤による表面処理等）することが好ましい。表面が相溶化处理された無機結晶核剤は、樹脂との相互作用が高められて分散性が向上し、無機物の凝集を防止することができる。

【0050】

これらの結晶核剤の中でも、タルク等の層状化合物が好ましい。また、無機系の結晶核剤と有機系の結晶核剤は併用しても良い。これらの結晶核剤を複数種併用することも可能である。

【0051】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物における結晶核剤の含有量は、特に限定されるものではないが、0.1～20質量%であることが好ましい。

【0052】

本発明におけるケナフ繊維強化樹脂組成物中の各種含有成分の混合方法には特に制限はなく、公知の混合機、例えばタンブラー、リボンブレンダー等による混合や押出機、ロール等による溶融混合が挙げられる。

【0053】

本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物を成形する方法には特に制限はなく、公知の射出成形、射出・圧縮成形、圧縮成形法等、通常の電気・電子機器製品の製造に必要とされる成形方法を用いることができる。

【0054】

これらの溶融混合や成形時における温度については、使用する樹脂が軟化する温度から200℃までの間で選択可能である。温度が200℃を超える場合、ケナフ繊維の熱劣化により補強効果が低減する可能性がある。

【0055】

ただし、表面処理を施して耐熱性を向上させたケナフ繊維を用いる場合は、ケナフ繊維の熱劣化が抑えられるため、200℃以上での溶融混合や成形も可能である。また、成形加工温度に比して低い融点を有する滑剤を併用する場合も200℃以上での溶融混合や成形が可能である。その理由は、低融点の滑剤は樹脂中に分散し易く且つケナフ繊維の表面にも付着し易いので、樹脂やケナフ繊維に滑

性を付与することができ、その結果、ケナフ繊維同士やケナフ繊維と樹脂間に発生するせん断発熱、および金型面との摩擦等を低減することができるからである。低融点の滑剤を併用することによるせん断発熱や摩擦熱の低減は、樹脂の部分的な高温化を抑制するので、繊維の劣化を抑制でき、200℃以上での成形が可能となる。

【0056】

【実施例】

次に、具体的な実施例を用いて本実施の形態の動作を説明する。

【0057】

(実施例1)

ケナフ繊維として靱皮繊維（靱皮のみから作製したケナフ繊維）を用い、そのケナフ繊維は、平均繊維長（破碎片（長手方向の長さが50 μ mに満たないもの）を除く繊維の数平均繊維長）が3～5mmであった。なお、図1は本実施例で使用了靱皮繊維（靱皮のみから作製したケナフ繊維）の顕微鏡写真であり、図2は同じ靱皮繊維の倍率の異なる顕微鏡写真である。

【0058】

この靱皮繊維10質量%とポリ乳酸（島津製作所製、ラクティ9030）90質量%をそれぞれ100℃で5時間乾燥した後、混練機（栗本鉄工所製のS1ニーダー、混練温度：180℃）で熔融混合し、ペレットを得た。得られたペレットを100℃で5時間乾燥した後、射出成形機（東芝機械製、EC20P-0.4A、成形温度：180℃、金型温度：25℃）を用いて、試験片（125×13×3.2mm）を成形した。

【0059】

その試験片を100℃の恒温槽の中で4時間放置した後、室温まで戻し、熱変形温度、曲げ弾性率をそれぞれ測定した。熱変形温度は、JIS K 7191-2に準拠し、高荷重（1.80MPa）で測定した。曲げ弾性率の測定は、ASTM D790に準拠した。結果を表1に示した。

【0060】

(実施例2～4)

実施例 1 において、靱皮繊維とポリ乳酸の比率を、靱皮繊維／ポリ乳酸＝15／85、20／80、30／70（それぞれ質量比）とし、それ以外は実施例 1 と同様とした。靱皮繊維のポリ乳酸への補強効果を実施例 1 と同じ方法で評価し、その結果を表 1 に示した。

【0061】

表 1 に示すように、靱皮繊維の含有によって、ポリ乳酸と同等の混練性でポリ乳酸の曲げ弾性率を向上でき、特に高荷重での熱変形温度を大幅に向上できることが判明した。また、表 1 に示すように、靱皮繊維を含有したポリ乳酸は、ポリ乳酸と同等の混練性でポリ乳酸の曲げ弾性率を向上できた。特に、靱皮繊維の含有量を 15 質量％以上とした場合には、高荷重での熱変形温度（耐熱性）も大幅に向上できることが判明した。靱皮繊維の含有量が 20 質量％以上では、熱変形温度の向上は頭打ちになるが、曲げ弾性率はなお向上した。これらの測定値にばらつきはなく、安定した補強効果が発現できることも確認した。

【0062】

（実施例 5）

実施例 1 において、靱皮繊維を用いる代わりに、靱皮部と木質部から作製した全茎繊維を用いた。それ以外は実施例 1 と同様とし、その結果を表 1 に示した。

【0063】

図 3 は使用した全茎繊維の顕微鏡写真である。用いた全茎繊維の平均繊維長は 100～200 μm であったが、1 mm 以上の長い繊維も混ざっていた。長い繊維は靱皮部から得られたものである。全茎繊維を用いた試料についても、表 1 に示すように、曲げ弾性率を指標とする補強効果は靱皮繊維と同等であった。一方、熱変形温度を指標とする耐熱性の向上は靱皮繊維には劣った。十分検証はできていないが、靱皮繊維が mm レベルの長い繊維であることが耐熱性向上に有効に働いたと推定している。

【0064】

（比較例 1）

実施例 1 において、靱皮繊維を用いる代わりに、ケナフ繊維と同じ軟質繊維である亜麻繊維を用いた。それ以外は実施例 1 と同様とし、その結果を表 1 に示し

た。表1に示すように、亜麻繊維を15質量%含有したものは、靱皮繊維を10質量%含有したものと同程度の補強効果しか得られないことが判明した。この理由は、亜麻繊維の強度がケナフ繊維に劣ることに起因していると推定される。

【0065】

(比較例2～3)

比較例2は、実施例1において、ケナフ繊維とポリ乳酸の比率をケナフ繊維／ポリ乳酸＝5／95（質量比）とした場合であり、それ以外は実施例1と同様とし、その結果を表1に示した。表1に示すように、靱皮繊維の含有量が5質量%以下の場合、補強効果がほとんど得られないこと、および、靱皮繊維含有量が5質量%と10質量%の間で曲げ弾性率が著しく向上することが分かった。

【0066】

比較例3は、実施例1において、ケナフ繊維とポリ乳酸の比率をケナフ繊維／ポリ乳酸＝60／40（質量比）とした場合であり、それ以外は実施例1と同様とした。しかし、実施例1と同じ方法で評価しようとしたが、混練時のペレット化が困難で、成形以降の評価ができなかった。

【0067】

【表 1】

	参照例	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1	比較例 2	比較例 3
靱皮繊維(質量%)	—	10	15	20	30	—	—	5	60
全茎繊維(質量%)	—	—	—	—	—	15	—	—	—
亜麻繊維(質量%)	—	—	—	—	—	—	15	—	—
ポリ乳酸(質量%)	100	90	85	80	70	85	85	95	40
混練性(*)	○	○	○	○	○	○	○	○	×
熱変形温度(°C) (1.80MPa)	66	72	108	121	122	98	74	69	測定不能
曲げ弾性率(GPa)	4.54	5.40	6.25	7.60	8.64	6.28	5.69	4.56	測定不能

(*)○:混練性良好(溶融混合時にペレット化が可能)、×:混練性不良(溶融混合時にペレット化が不可能)

【0068】

(実施例 6)

実施例 1 において、ケナフ繊維とポリ乳酸の比率をケナフ繊維／ポリ乳酸＝15／85（質量比）とし、さらに、タルクをケナフ繊維とポリ乳酸 95 質量％に対して 5 質量％併用させたペレットを、実施例 1 と同じ方法で作製した。得られたペレットを、100℃で 5 時間乾燥した後、射出成形機（東芝機械製、EC20P-0.4A、成形温度：180℃、金型温度：100℃）を用いて、試験片（125×13×3.2mm）を成形した。その結果、結晶核剤を併用することで、高温の金型温度での成形性を改良できることが判明した。

【0069】

なお、本発明は上記各実施例に限定されず、本発明の技術思想の範囲内において、各実施例は適宜変更され得ることは明らかである。

【0070】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物によれば、20mm以下の繊維長を有するケナフ繊維の特定量を生分解性樹脂、好ましくは生分解性熱可塑性樹脂に含有させることで、電気・電子機器製品の製造に必要とされる成形方法を好ましく適用できる。さらに、本発明のケナフ繊維強化樹脂組成物で成形した成形体の機械的強度を改善することができると共に、その耐熱性を大幅に向上させることができる。また、本発明の樹脂組成物がケナフ繊維を含有することで、生分解性樹脂、特に生分解性熱可塑性樹脂の収縮率も低減できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施例で使用した靱皮繊維（靱皮のみから作製したケナフ繊維）の顕微鏡写真である。

【図 2】

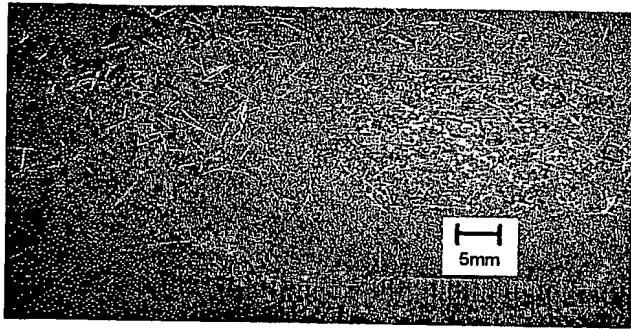
本発明の実施例で使用した靱皮繊維（靱皮のみから作製したケナフ繊維）の顕微鏡写真である。

【図 3】

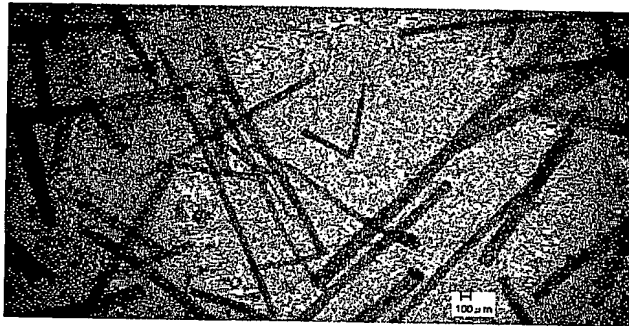
本発明の実施例で使用した全茎繊維（靱皮部と木質部を合わせた全茎部から調製した繊維）の顕微鏡写真である。

【書類名】 図面

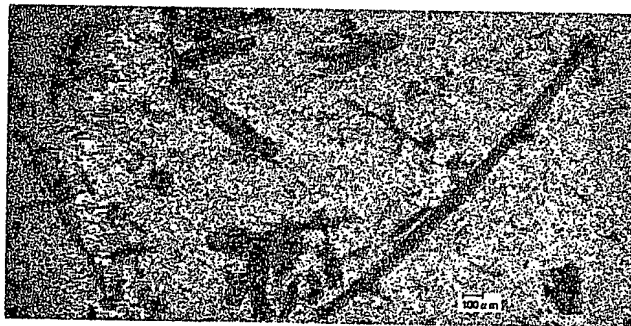
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 電気・電子機器製品等の成形品の製造に適した繊維強化樹脂組成物を提供することにある。

【解決手段】 ケナフ繊維を含有した生分解性樹脂組成物であって、ケナフ繊維の含有量を10～50質量%とすることにより、上記課題を解決した。このとき、生分解性樹脂が結晶性を有する熱可塑性樹脂であることが好ましく、特にポリ乳酸であることが好ましい。また、ケナフ繊維の平均繊維長（破砕片を除く繊維の数平均繊維長）が100 μ m～20mmであることが好ましく、また、ケナフ繊維が300 μ m～20mmの繊維長のケナフ繊維を含むことが好ましい。ケナフ繊維としては、ケナフの韌皮部から調製した繊維であることが好ましい。

【選択図】 図2

特願 2003-003856

出願人履歴情報

識別番号

[000004237]

1. 変更年月日

1990年 8月29日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区芝五丁目7番1号

氏 名

日本電気株式会社